



Bundesamt für Strahlenschutz

# Deckblatt

GZ: QM - 9A 24250000 / SE 4.2.3

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd.Nr.	Rev.	Seite: I
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

Titel der Unterlage:

SCHACHTANLAGE ASSE II, SORPTIONSUNTERSUCHUNGEN AN GESTEINSPROBEN AUS DER BOHRUNG REMLINGEN 15 - TEIL 1: PROBENAHME

Ersteller:

KIT-INE

Stempelfeld:

Freigabe durch bergrechtlich verantwortliche Person:

Freigabe durch atomrechtlich verantwortliche Person:

Freigabe PL:

Freigabe zur Anwendung:

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung des BfS.



Bundesamt für Strahlenschutz

# Revisionsblatt

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: II
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

Titel der Unterlage:

SCHACHTANLAGE ASSE II, SORPTIONSUNTERSUCHUNGEN AN GESTEINSPROBEN AUS DER BOHRUNG REMLINGEN 15 - TEIL 1: PROBENAHME

Rev.	Rev.-Stand Datum	UVST	Prüfer	Rev. Seite	Kat.*	Erläuterung der Revision

\*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur  
Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung  
Kategorie S = substantielle Änderung  
mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 1 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

**Auftragnehmer  
Karlsruhe Institute of Technology (KIT)  
Institut für Nukleare Entsorgung (INE)  
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1  
76344 Eggenstein-Leopoldshafen**

Ort, Unterschrift



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 2 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

**Impressum:**

Auftraggeber: Bundesamt für Strahlenschutz  
Willy-Brandt-Str. 5  
38226 Salzgitter  
Telefon: 030 18333-0  
Telefax: 030 18333-1885  
E-Mail: [epost@bfs.de](mailto:epost@bfs.de)  
Internet: [www.bfs.de](http://www.bfs.de)

Ersteller:

Institut für Nukleare Entsorgung (INE)  
Karlsruhe Institute of Technology (KIT)  
[www.kit.edu](http://www.kit.edu)

Bericht Nr.: KIT-INE 003/2014

Abbildungen: Originalabbildungen

Der Bericht wurde im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) erstellt. Das BfS behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit Zustimmung des BfS zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 3 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

Revisionsblatt

Rev.	Rev.-Stand Datum	revidierte Seite	Kat. *)	Erläuterung der Revision

\*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur  
Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung  
Kategorie S = substantielle Revision  
Mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 4 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

## KURZFASSUNG

Autor(en):

**Titel:** Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme

KIT-INE 003/2014

Stand: 14.12.2015

Im Rahmen der Einzelbeauftragung Nr. 3 "Sorptionsuntersuchungen im Deckgebirge" Teil 1 – Pro-benahme wurden insgesamt 26 Gesteinsproben aus der Erkundungsbohrung Remlingen 15 gewonnen. Die Proben umfassen Gesteine aus dem Muschelkalk, dem Buntsandstein und dem Hutgestein. Von den Gesteinsproben wurden 16 Proben, die für die Charakterisierung und für Sorptionsuntersuchungen vorgesehen sind, unter Inertgas (Argon) gelagert und für die weitere Verwendung aufbereitet. Die 10 übrigen Proben stammen aus dem Buntsandstein aus der Tiefe von ca. 270 m. Sie wurden tiefgefroren und stehen für Redoxspeziationsuntersuchungen des Gesteins zur Verfügung.

Der vorliegende Bericht fasst die Arbeiten zur Probenahme im Rahmen der Erkundungsbohrung und die Vorbereitung der Gesteinsproben zur Untersuchung des Sorptionspotentials zusammen. Die direkte Porenwassergewinnung aus der Bohrung Remlingen 15 war nicht vorgesehen.

Bevor die Sorptionsexperimente durchgeführt werden können, müssen diese Gesteinsproben charakterisiert und analysiert werden. Diese Arbeiten werden in einem separaten Bericht dargestellt.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 5 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

## ABSTRACT

Authors:

Title: Asse II Mine,  
Investigation of Sorption onto Rock Samples from the Drill Hole Remlingen 15  
Part 1: Sampling

KIT-INE 003/2014

Status: 14.12.2015

In the scope of the contract No. 3 "Investigation of Sorption onto Rock Samples from Drill Hole Remlingen 15" – Sampling, 26 rock samples were sampled from the drill hole Remlingen 15. The samples comprised rocks from lime stone layers, sandstone layers and from cap rock. 16 sample are stored under inert gas conditions (argon). These samples are reserved for characterization and sorption tests. The other 10 samples from sandstone layes at around 270 m depth are deeply frozen and are foreseen to be used for redox speciation investigations of the rocks.

The present report summarizes the activities of the sampling at the drilling site and the preparation of the rock samples for the sorption tests. Direct sampling of pore water was not possible during the drilling.

Before starting the sorption experiments, the rock samples need to be characterized and analyzed with respect to their sorption relevant properties. The related activities and the results are documented in a separate report.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 6 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

## **INHALTSVERZEICHNIS**

<b>KURZFASSUNG</b> .....	<b>4</b>
<b>ABSTRACT</b> .....	<b>5</b>
<b>INHALTSVERZEICHNIS</b> .....	<b>6</b>
<b>ABBILDUNGSVERZEICHNIS</b> .....	<b>7</b>
<b>TABELLENVERZEICHNIS</b> .....	<b>7</b>
<b>ANHANGSVERZEICHNIS</b> .....	<b>7</b>
<b>ABKÜRZUNGEN &amp; GLOSSAR</b> .....	<b>8</b>
<b>1 EINLEITUNG</b> .....	<b>9</b>
<b>2 KONZEPT DER PROBENAHME AN DER ERKUNDUNGSBOHRUNG REMLINGEN 15</b> .....	<b>11</b>
2.1    PROBENAHME VOR ORT.....	11
2.2    GEWINNUNG DER FESTSTOFFPROBEN .....	12
2.2.1    Proben für Sorptionsuntersuchungen.....	13
2.2.2    Proben für Porenwassercharakterisierung und Redoxspeziation .....	14
2.3    PROBENVERPACKUNG, PROBENTRANSPORT, PROBENLAGERUNG .....	15
<b>3 VORBEREITUNG DER GESTEINSPROBEN FÜR DIE CHARAKTERISIERUNG UND DIE SORPTIONSEXPERIMENTE</b> .....	<b>18</b>
<b>4 ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK AUF DIE FOLGENDEN ARBEITEN</b> .....	<b>20</b>
<b>LITERATURVERZEICHNIS</b> .....	<b>21</b>
<b>ANHANG A    BESPRECHUNGSNOTIZ 05.06.2013</b> .....	<b>23</b>
<b>ANHANG B    ANALYSEN DER BOHRSPÜLUNG</b> .....	<b>26</b>

Gesamtseitenzahl: 28

Stichworte: Deckgebirge, Muschelkalk, Buntsandstein, Hutgestein, Probenahme, Bohrung Remlingen 15



Bundesamt für Strahlenschutz

# Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 7 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

## ABBILDUNGSVERZEICHNIS

Abb. 1:	Bohrkern vor der Probenahme.....	13
Abb. 2:	Lagerbehälter für Bohrkern für Sorptionsversuche einschließlich Argon-Versorgung auf dem Bohrplatz Remlingen 15.....	14
Abb. 3	Eingeschweißte und tiefgefrorene Gesteinsproben aus dem Röt (Probe 020_KIT und 018_KIT).....	15
Abb. 4	Probenbehälter mit Argon-Zuführung, Entlüftungsventil, Manometer und Air Liquide Druckbegrenzer (0.5 bar/0.05 MPa) zur Lagerung der Bohrkern. ....	17
Abb. 5	Inertgasbox zur Präparation der Gesteinsproben.....	17
Abb. 6:	Proben für BET Messungen.....	18
Abb. 7:	Pulverproben aus den Bohrkernen 002_KIT, 003_KIT, 004_KIT, 005_KIT und 006_KIT.....	19
Abb. 8:	Experimenteller Aufbau in einer Inertgas-Handschuhbox zur Untersuchung der CO <sub>2</sub> -Gas Gleichgewichte und zur Gewinnung von Porenwasser auch durch Äquilibration mit dem Gestein. ....	19
Abb. 9:	Röntgendiffraktogramm des getrockneten Überstands der Spüllösung (13.06.2013). Identifizierte Phasen in getrockneten Überstand: NaCl (eingezeichnete Linien), Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> ·10H <sub>2</sub> O, Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> ·3NaHCO <sub>3</sub> . ....	27
Abb. 10:	Röntgendiffraktogramme der beiden Bohrspülsuspensionen, die am 13.06.2013 (Muschelkalk) und am 07.01.2014 (Buntsandstein) gewonnen wurden. Identifizierte Phasen: Kalzit, Quarz, Glimmer und das Schichtsilikat Chlorit, im 2-θ Bereich < 10° findet sich ein breiter Reflex, der Tonphasen zugeordnet werden kann. ....	27

## TABELLENVERZEICHNIS

Tab. I:	Probenbezeichnungen, Teufenlage, Gestein und Art der Lagerung der Deckgebirgsproben. ....	16
Tab. II:	Kationenanalysen der Bohrspülungen. ....	26
Tab. III:	Anionenanalysen der Bohrspülungen. ....	26

## ANHANGSVERZEICHNIS

Anhang A	Besprechungsnotiz 05.06.2013.....	23
Anhang B	Analysen der Bohrspülung .....	26



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 8 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

## ABKÜRZUNGEN & GLOSSAR

Bezeichnung	Bedeutung
BET	Oberflächenbestimmung nach Brunauer, Emmett und Teller
BfS	
DTA	Differential-thermische Analyse
DSC	Differenz-Scanning-Kalorimetrie
Eh	Platin-Kombinationselektrode mit Ag/AgClReferenzsystem
IC	Ionenchromatographie
ICP-MS	Induktiv gekoppelte Massenspektrometrie
ICP-OES	Optische Atomemissionsspektrometrie
KAK	Kationenaustauschkapazität
KIT	Karlsruher Institut für Technologie, Karlsruhe
KIT-INE	Institut für Nukleare Entsorgung am KIT
pH	Konzentration der freien Protonen (als negativ dekadischer Logarithmus)
RFA	Röntgenfluoreszenzanalyse
SEM-EDX	Rasterelektronenmikroskopie SEM mit energiedispersiver Röntgenspektroskopie EDX zur Elementanalyse
TIC	Gesamter anorganisch gebundener Kohlenstoff
TOC	Gesamter organisch gebundener Kohlenstoff
TC	Gesamtkohlenstoffgehalt (organisch und anorganisch gebundener Kohlenstoff)
XPS	Röntgenphotoelektronenspektroskopie
XRD	Röntgenpulverdiffraktometrie



Bundesamt für Strahlenschutz

## Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 9 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

### 1 EINLEITUNG

Sorptionskoeffizienten für Radionuklide im Deckgebirge der Schachtanlage Asse II sind nur spärlich verfügbar. Die vorliegenden Informationen basieren auf veröffentlichten Sorptionsdatensätzen in der Dissertation von Bode (1989), „Untersuchungen zur Bestimmung der Rückhalteigenschaften von Gesteinen über der Schachtanlage Asse II gegenüber gelösten Radionukliden“, GSF-Bericht 16/89 [1] und den Arbeiten von Bode/Wolfrum [2-4]. Verschiedene Migrationspfade bezüglich Länge, Geometrie, Fließgeschwindigkeiten, Porosität und Durchlässigkeit im Deckgebirge sind möglich, auf denen Sorptionseffekte stattfinden. Die Sorption der Radionuklide wird bei Langzeitsicherheitsbetrachtungen und entsprechenden hydrogeologischen Modellierungen berücksichtigt. Neue experimentelle Daten sind notwendig, um die Rückhaltung von Radionukliden, die in potentiell austretenden Grubenwässern auftreten, in der Deckgebirgsformation abzuschätzen.

Am 09.01.2013 wurde KIT-INE vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) angefragt ein Untersuchungsprogramm zu konzipieren, welches alle für die späteren Sorptionsuntersuchungen notwendigen Schritte von der Probenahme, Probenlagerung, Analyse, Auswertung bis hin zur Berichterstattung umfasst. Auf Basis der Erfahrungen aus dem Untersuchungsprogramm zur Sorption im Deckgebirge von ERAM [5, 6], Gorleben und anderen Lokationen [7], sowie aus den Erkenntnissen aus einer Studie für das Öko-Institut 2012 [8], wurde ein Konzept entworfen. Das Konzept umfasste die Probenahme, die Vorbereitung der Gesteinsproben zur Porenwassergewinnung, die Durchführung der chemischen und mineralogischen Gesteinscharakterisierung und die Durchführung und Auswertung der Sorptions- und Desorptionsexperimente.

Am 28.05.2013 beauftragte das BfS das KIT-INE vom erbohrten Kernmaterial (Durchmesser 101 mm) der Erkundungsbohrung Remlingen 15 Gesteinsproben zu nehmen und diese zur Untersuchung des Sorptionspotentials der Gesteine vorzubereiten. Hierzu gehört die Charakterisierung der Gesteine hinsichtlich ihrer sorptionsrelevanten Eigenschaften. Der Umfang der Arbeiten umfasste die folgenden Zielsetzungen und Inhalte:

- Herstellung bzw. Beschaffung der Probenbehälter
- Probenahme vor Ort durch das Personal von KIT-INE
- Probenverpackung, Probentransport, Probenlagerung
- Vorbereitung der Gesteinsproben, Porenwassergewinnung und –untersuchung
- Auswertung und Berichterstattung

Es sollten folgende Gesteinsschichten beprobt werden:

#### Unterer Muschelkalk:

- Schaumkalkbänke (muS)
- Wellenkalk 3 (muW3)
- Wellenkalk 2 (muW2)
- Wellenkalk 1 (muW1)

#### Oberer Buntsandstein:

- Röttaquitard (so2 - so4)
- Rötanhydrit 1 (so1A)



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 10 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

Hutgestein:

- Ry

Zur Abstimmung und Organisation der Probenahme fand am 05.06.2013 eine Besprechung an der Erkundungsbohrung Remlingen 15 statt, bei welcher Vertreter der Asse GmbH, der Bohrfirma Daldrup & Söhne, des BfS und KIT-INE anwesend waren. Die Besprechungsnotiz findet sich in Anlage A. Die Bohrung wurde am 05.06.2013 begonnen. Bis November 2013 sollte die Endteufe in ca. 800 m erreicht werden. Es war vorgesehen die Bohrung in 5 m Intervallen durchzuführen. Im oberen Bereich sollte die Bohrgeschwindigkeit ca. 30 m/Tag, in tieferen Schichten ca. 15 m/Tag betragen. Auf diesen Zeitplan wurde die Probenahme durch KIT-INE ausgerichtet. Aufgrund verschiedener Komplikationen während des Bohrbetriebes (unvorhergesehene Zementationsarbeiten, Strangabriss, etc.) konnte die ursprüngliche Planung nicht eingehalten werden.

Für die späteren Sorptionsexperimente ist die Kenntnis der verwendeten Spülungen von erheblicher Bedeutung, da die Bentonit-Komponente die tatsächlichen Sorptionseigenschaften überlagern könnte. Deshalb sollten geeignete Spülungsproben während des Bohrbetriebes genommen werden.

Für die Probenahme vor Ort, die Probenverpackung und Probenlagerung am Bohrplatz Remlingen 15 wurden mehrere Sicherheits- und Gesundheitsdokumente angefertigt, in denen jeder Handhabungsschritt explizit beschrieben und auf besondere Vorsichts- und Schutzmaßnahmen hingewiesen wurde. Die Bohrkampagne fand in mehreren Abschnitten vom 09.06. – 23.06.2013, 11.11. – 20.11.2013, und ab dem 07.01.2014 statt.

Im vorliegenden Bericht sind die Arbeiten im Rahmen der Probenahme von der Erkundungsbohrung Remlingen 15 zusammengefasst.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 11 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

## 2 KONZEPT DER PROBENAHE AN DER ERKUNDUNGSBOHRUNG REMLINGEN 15

Ein wesentlicher Kritikpunkt an den Arbeiten von Bode [1] und Bode/Wolfrum [2-4] ist die unzureichende Kenntnis des zu den damals untersuchten Deckgebirgsschichten gehörigen Porenwassers und die mangelnde Aufklärung der zugrundeliegenden Rückhaltemechanismen. Dieser Kritik sollte bereits bei der Gewinnung von Gesteinsproben Rechnung getragen werden, indem eine Probenahmemethode angewandt werden sollte, die dem heutigen Stand von Probenahmen für Sorptionsexperimente repräsentiert. Erfahrungen hierzu wurden im Rahmen der EU Projekte FUNMIG (Special Issue of Applied Geochemistry [9]), ReCosy [10, 11] und CROCK [12, 13] gewonnen. Im EU Projekt CROCK organisierte KIT-INE die Probenahme im Untertagelabor Äspö in Schweden (siehe Kap. *Experimental material and characterization*, in [14]). Detaillierte Angaben zur Probencharakterisierung finden sich im Beitrag *Characterization of new crystalline material for investigations within CP CROCK* in [14].

KIT-INE schlug folgende Anforderungen an die Probenahme vor:

- Gewinnung der Proben ohne Kontamination durch Bohrspülung.
- Gewinnung der Proben unter Vermeidung von Luftkontakt.
- Vermeidung des Austrocknens der Proben.
- Verpackung der Proben schnellstmöglich in gasdichten Behältern und Spülen mit Argon.
- Proben sollten hinreichen groß sein, um Porenwasser gewinnen zu können (dies ist bei tonigen Proben bis zu ca. 4% Porosität möglich).
- Falls keine intakten Bohrkerne verfügbar sind: Durchmesser der einzelnen Stücke sollen hinreichend groß sein, um chemisch ungestörten zentralen Kern präparieren zu können.
- Falls Kluft angetroffen wird: Dieses Material ist besonders interessant, da die höchste Migration längs von Klüften stattfindet.
- Menge an Material: ca. 40 – 50 cm Bohrkern (<10 kg) für jede zu untersuchende Schicht.

Zur Präzisierung der Probenahme und Probenbehandlung wurden mindestens folgende Informationen bzw. Dokumentationen benötigt:

- Bohrverfahren
- Art und Chemie der vorgesehenen Spüllösung
- Vorgesehenes Verfahren zur Dokumentation, Verpackung und Behandlung der Bohrkerne im Rahmen der Archivierung der Bohrkerne.

### 2.1 PROBENAHE VOR ORT

Bei der Besprechung vom 05.06.2013 (Protokoll siehe Anhang A) mit den für die Bohrung zuständigen Personen von BfS, Asse GmbH, K-UTEC und der Bohrfirma Daldrup & Söhne wurde diskutiert, dass die Gesteine des Unteren Muschelkalks (Schaumkalkbänke (muS), Wellenkalk 3 (muW3), Wellenkalk 2 (muW2), Wellenkalk 1 (muW1)) aufgrund ihrer



Bundesamt für Strahlenschutz

## Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 12 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

allgemeinhin beobachteten Härte und Dichtigkeit geringe Porositäten aufweisen können. Deswegen werden sie eher als Kluffgrundwasserleiter denn als Porengrundwasserleiter angesehen. Das BfS vermutet daher, dass diese Gesteine weniger relevant für eine potentielle Radionuklidrückhaltung sind als die Rötgesteine, der Salztön und die Hutgesteine. Es wurde vereinbart, dass die Proben weniger nach der Schichtfolge sondern nach "interessanten" Eigenschaften ausgewählt werden sollen. Besonders interessant sind Klüfte bzw. Kluffmaterialien, auch wenn diese nicht als kompakter Bohrkern gewonnen werden können. Eine intensivere Beprobung sollte im Rötgestein erfolgen. Auch die Untersuchung der Porenwässer der Rötgesteine sollten Priorität gegenüber denjenigen des Muschelkalks haben.

## 2.2 GEWINNUNG DER FESTSTOFFPROBEN

KIT-INE-Personal war mehrfach anwesend, um die Probenahme durchzuführen bzw. um Mitarbeiter der Firma K-UTEC einzuweisen, damit die Probenahme auch in Abwesenheit von KIT-INE Mitarbeitern durchgeführt werden konnte.

Wie oben beschrieben, wurde eine Reihe von Anforderungen an die Probenahme gestellt, wobei der Gewinnung der Proben ohne Kontamination durch Bohrspülung besonderes Gewicht beigemessen wurde. Bei der Besprechung am 05.06.2013 am Bohrplatz wurde KIT-INE mitgeteilt, dass die Bohrkern in einem Plastikrohr gewonnen und deswegen wenig mit Bohrspülung in Kontakt gekommen seien. Wie die Abb. 1 zeigt, konnte diese Anforderung nur bedingt eingehalten werden.

Am 07.01.2014 wurde die Spüllösung mit Uranin versetzt, wobei eine Konzentration von ca. 1g Uranin pro m<sup>3</sup> Spüllösung eingestellt werden sollte<sup>1</sup>. An den Proben 011\_KIT, 012\_KIT und 021\_KIT, die am 08.01. und 09.01.2013 nach der Uraninzugabe gewonnen wurden, konnte unter UV-Beleuchtung keine Fluoreszenz beobachtet werden.

Ein möglicher Luftkontakt der Proben wurde durch die Verpackung der Proben in einen Foliensack, der mit Argon-Gas gespült und dann verschweißt und unter Argon gelagert wurden, minimiert. Durch diese Behandlung wurde auch das Austrocknen der Proben verhindert.

Für die Analysen wurde Material aus einem relativ ungestörten zentralen Bereich der Bohrkern präpariert. In einigen Schichten wurden relativ kleine Bruchstücke gefunden. Ob es sich dabei um Kluffmaterial handelt, kann erst nach den detaillierten Untersuchungen gesagt werden.

Zur Identifikation von Kontaminationen der Gesteinsproben durch die Bohrspülung wurden am 13.06.2013 während Zementationsarbeiten im Muschelkalk (erreichte Teufe: ca. 49,8 m) und am 07.01.2014 während des Bohrbetriebes im Buntsandstein (Bohrteufenabschnitt ca. 255 - 265 m) Proben der Spüllösung nach Austritt aus dem Bohrloch gewonnen und später im KIT-INE analysiert. Die Ergebnisse befinden sich im Anhang B.

<sup>1</sup> Email von \_\_\_\_\_, K-UTEC, an \_\_\_\_\_, KIT-INE, 30. Januar 2014, 15:43.



Bundesamt für Strahlenschutz

## Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 13 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015



Abb. 1: Bohrkern vor der Probenahme.

### 2.2.1 Proben für Sorptionsuntersuchungen

Probenstücke aus Bohrkernen (Länge 30-50 cm und im Durchmesser der Kernbohrung) sollten direkt nach der Entnahme aus der Bohrung und der geologischen Voruntersuchung in Schlauchfolie verpackt werden. Der einseitig verschweißte Folienbeutel wurde von oben mit Argon-Gas aus einem N50 Bündel mittels eines Gasschlauchs und Niederdruckventils ca. eine Minute gespült und dann verschweißt. Es war darauf zu achten, dass das schwerere Argon-Gas bis zum Verschweißen im Beutel bleibt. Deswegen war die Öffnung des Beutels nach oben zu halten. Wichtig war, dass die Gesteinsproben möglichst kurz an Luft gelagert wurden. Bis zum Abtransport der Bohrkern sollten diese in einen 200-L-Behälter eingelagert werden, welcher verschraubt und dann mit Argon-Gas gespült werden sollte. Es wurde ein neuer lackierter 200-L-Stahlbehälter verwendet, dessen Deckel mit Argon-Zuführung, Entlüftungsventil, Manometer und „Air Liquide“-Druckbegrenzer (0.5 bar/0.05 MPa) ausgestattet war (siehe Abb. 4). Der Behälter war nicht als Druckbehälter einzuordnen. Bei offenem Entlüftungsventil wurde Argon-Gas in den Behälter eingeleitet und ca. 5 Minuten gespült. Dann wurde das Entlüftungsventil geschlossen und max. 0.5 bar Argon-Gasdruck aufgegeben. Der Manometerstand sollte regelmäßig überprüft werden. Diese Art der Probenbehandlung konnte nach Einweisung auch Personal der K-UTEC durchführen. KIT-INE stellte die geeigneten Verpackungsfolien, Folienschweißgerät, Argon-Gas und das Lagergefäß am Bohrplatz Remlingen 15 zur Verfügung.

Für die Argon-Gas-Versorgung wurde auf zugelassene Lager- und Transportpaletten der Fa. Air Liquide zurückgegriffen. Diese Art der Probenahme war unproblematisch und konnte ohne wesentliche Störung des Ablaufs der Bohrung durchgeführt werden. (siehe Sicherheits- und Gesundheitsdokument vom 11.06.2013 [15]).



Bundesamt für Strahlenschutz

## Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 14 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015



Abb. 2: Lagerbehälter für Bohrkern für Sorptionsversuche einschließlich Argon-Versorgung auf dem Bohrplatz Remlingen 15.

### 2.2.2 Proben für Porenwassercharakterisierung und Redoxspeziation

Aufwendiger stellte sich die Probenahme/-vorbereitung für die Proben zur Untersuchung der Porenwässer dar, da zunächst geplant war die Sorptionsexperimente mit einer wässrigen Phase durchzuführen, die dem Porenwasser der jeweiligen Gesteinsprobe entspricht. Die direkte Porenwassergewinnung war jedoch nicht möglich.

Folgende Untersuchungen an den Porenwässern der Proben waren vorgesehen: Redoxzustand des Porenwassers (Bestimmung von  $\text{Fe}^{\text{II}}$ ,  $\text{Fe}^{\text{III}}$ , TIC, DOC), Gasmessung zur Ermittlung des im Porenwasser gelösten  $\text{pCO}_2$ , Ermittlung der  $\text{Fe}^{\text{II}}/\text{Fe}^{\text{III}}$ -Konzentrationen im Feststoff (Redoxsystem). Für diese Untersuchungen muss die Oxidation der Proben durch Luftsauerstoff, der Eintrag von  $\text{CO}_2$  und der Austrag von gelöstem  $\text{CO}_2$  bzw. Karbonat verhindert werden. Zur Vermeidung des Austauschs der Porenwässer mit ihrer Umgebung wurden die Proben direkt nach der Probenahme in flüssigem Stickstoff tiefgefroren. Ein ähnliches Tiefgefrierverfahren wird auch bei der Messung von Redoxpotentialen und der Mössbauer-Spektrometrie von  $\text{Fe}^{\text{II}}$  auf  $\text{Fe}^{\text{III}}$ (oxyhydr)oxiden angewandt [16]. Hierzu war folgende Vorgehensweise angebracht:

Bohrkernstücke (maximal 10 cm Länge, mit dem Durchmesser des Bohrkerns) wurden nach der geologischen Voruntersuchung in Schlauchfolie verpackt (Abb. 3). Diese wurde mit

 Bundesamt für Strahlenschutz			<b>Schachtanlage Asse II,          Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben          aus der Bohrung Remlingen 15          Teil 1: Probenahme</b>			Seite: 15 von 28	
						Stand: 14.12.2015	
Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		

einem Vakuumierer evakuiert, verschweißt und mindestens 5 min in flüssigen Stickstoff getaucht. Dann wurde das Bohrkernstück in eine Kühlbox bei -18°C gebracht und dort ca. eine Stunde gelagert. Danach wurde die Probe ein zweites Mal eingeschweißt und in der Kühlbox bei -18°C gelagert (siehe Sicherheits- und Gesundheitsdokument vom 04.07.2013 [17]). Die Stücke waren i.A. unregelmäßig geformt, eine Mindestlänge von 6 cm war erwünscht, konnte aber nicht immer eingehalten werden. Für diese Arbeiten waren ein Stickstofflagertank, Dewargefäße, Zangen und persönliche Schutzausrüstung (Gesichtsschild, Schutzbrille und Handschuhe) am Bohrplatz Remlingen 15 erforderlich.



Abb. 3 Eingeschweißte und tiefgefrorene Gesteinsproben aus dem Röt (Probe 020\_KIT und 018\_KIT).

Insgesamt verfügt KIT-INE über 26 Proben aus verschiedenen Gesteinsschichten (Tab. I). Die letzten Proben wurden in der Zeit vom 14.04. – 16.04.2014 von der Bohrung Remlingen 15 ins KIT-INE transferiert, die Argonversorgung und den Flüssigstickstofflagerbehälter an die jeweiligen Lieferanten zurückgegeben und die Probenahme durch KIT-INE beendet. Zu diesem Zeitpunkt war die Bohrung aus dem Deckgebirge bereits ins Salzgestein vorgedrungen.

## 2.3 PROBENVERPACKUNG, PROBENTRANSPORT, PROBENLAGERUNG

Die Aufbereitung der Proben für die Gesteinscharakterisierung und die Gewinnung des Probenmaterials für die Sorptionsproben erfolgte in einer Inertgasbox, die mit Haltevorrichtung, Bohrmaschine und Säge ausgestattet war (siehe Abb. 5).

KIT-INE bereitete insgesamt 20 Probenbehälter vor. Diese bestehen aus Edelstahlröhren mit aufgeschweißtem Boden und einem aufgeschraubten Deckel. Dieser Deckel ist mit Ar-Zuführung, Entlüftungsventil, Manometer und „Air Liquide“-Druckbegrenzer (0.5 bar/0.05 MPa) ausgestattet (siehe Abb. 4).

Nach dem Transfer von der Bohrstelle zum KIT-INE wurden die Behälter im Kühlschrank bei 4°C gelagert. Insgesamt sind 16 Gesteinsproben für Sorptionsexperimente und 10 tiefgefrorene Gesteinsproben vorhanden.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 16 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

Tab. I: Probenbezeichnungen, Teufenlage, Gestein und Art der Lagerung der Deckgebirgsproben.

Probe Nr.	Teufe der Probe (GOK)		vorläufige Stratigrafie Formation	Kürzel	Art der Lagerung	Datum der Probenahme
	von [m]	bis [m]				
001_KIT	14.60	15.00	Oberer Wellenkalk	muW3	Ar	09.06.2013
002_KIT	38.60	39.00			Ar	11.06.2013
003_KIT	45.58	45.90	Schaumkalkbank	muS	Ar	12.06.2013
004_KIT	50.00	50.10			Ar	14.06.2013
005_KIT	132.75	132.95	Röt 4	so4	Ar	23.06.2013
006_KIT	173.80	174.00			Ar	14.11.2013
007_KIT	225.49	225.85	Röt 3	so3	Ar	19.11.2013
008_KIT	266.00	266.10			gefroren	08.01.2014
009_KIT	266.10	266.20			gefroren	08.01.2014
010_KIT	266.20	266.30			gefroren	08.01.2014
011_KIT	266.30	266.60			Ar	08.01.2014
012_KIT	267.38	267.70			Ar	08.01.2014
013_KIT	267.70	267.80			gefroren	08.01.2014
014_KIT	267.80	267.90			gefroren	08.01.2014
015_KIT	267.90	268.00			gefroren	08.01.2014
016_KIT	271.00	271.28			Ar	08.01.2014
017_KIT	271.28	271.33			gefroren	08.01.2014
018_KIT	271.33	271.38			gefroren	08.01.2014
019_KIT	275.60	275.70			gefroren	09.01.2014
020_KIT	275.70	275.80			gefroren	09.01.2014
021_KIT	275.80	276.00	Ar	09.01.2014		
022_KIT	369.40	369.62	Röt 1	so1	Ar	14.01.2014
023_KIT	396.75	397.00	Hutgestein	cr	Ar	15.01.2014
024_KIT	414.60	415.00			Ar	15.01.2014
025_KIT	429.38	429.60			Ar	05.03.2014
026_KIT	439.00	439.30			Ar	05.03.2014



Bundesamt für Strahlenschutz

# Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 17 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

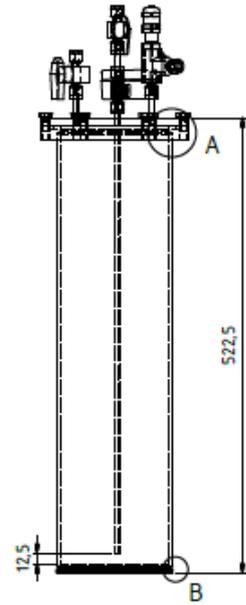


Abb. 4 Probenbehälter mit Argon-Zuführung, Entlüftungsventil, Manometer und Air Liquide Druckbegrenzer (0.5 bar/0.05 MPa) zur Lagerung der Bohrkerne.



Abb. 5 Inertgasbox zur Präparation der Gesteinsproben.



Bundesamt für Strahlenschutz

## Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 18 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

### 3 VORBEREITUNG DER GESTEINSPROBEN FÜR DIE CHARAKTERISIERUNG UND DIE SORPTIONSEXPERIMENTE

Die Charakterisierung der Gesteinsproben umfasst Untersuchungen zum Porenwasser und zu den Feststoffen. An den Bohrkernen wurden zunächst vorbereitende Arbeiten durchgeführt. Diese beinhalteten die mechanische Abtrennung der durch die Bohrspülung kontaminierten Bereiche der Bohrkerns und die Zerkleinerung einer gewissen Menge des Materials. Die Gesteinsproben wurden einzeln aus dem Lagerbehälter in eine Präparationsbox unter Ar-Gas-Atmosphäre eingeschleust. Dort wurde zunächst das durch die Bohrspülung beeinflusste Material abgesägt, dann die verbliebenen Gesteinsstücke mit einem Hammer vorzerkleinert und schließlich in einer Kugelmühle mit Wolframcarbideinsatz weiter zerkleinert. Nach dieser Behandlung wurden 3 Siebfractionen der Größe 100 – 63 µm, 63 - 40 µm und kleiner 40 µm hergestellt. Diese Korngrößen wurden in Anlehnung an die Arbeiten von Torstenfeld [18] und Vandergraaf [19] gewählt, die sie für kristalline Gesteine verwandt haben. Sieblinien wurden nicht erfasst. Eine Begründung für die Verwendung von Pulverproben für die Sorptionsversuche wird im Teil 2: Charakterisierung der Gesteinsproben detailliert dargestellt. Alle Arbeitsschritte erfolgen unter Inertgas. Die Arbeiten zur Charakterisierung der Gesteinsproben und der Porenwasser sowie die angewandten Methoden sind im nachfolgenden Bericht [20] aufgeführt und ihre Notwendigkeit begründet. Die Ergebnisse dieser Methoden werden für die Interpretation der Sorptionsergebnisse benötigt.

Für die vorgesehenen Untersuchungen und die anschließenden Sorptionsexperimente werden unterschiedlich aufbereitete Proben benötigt. Zur Ermittlung der spezifischen Oberflächen der Gesteinsproben mittels BET Messungen wird grobzerkleinertes Material ( $\varnothing \sim 5\text{mm}$ ) verwendet. Ein Beispiel ist in Abb. 6 gezeigt.



a) Probenmaterial für BET Messung.



b) Probenmaterial im BET Mess-Kolben.

Abb. 6: Proben für BET Messungen.

Einige Beispiele der Pulverproben sind in Abb. 7 gezeigt. Entsprechend ihrer unterschiedlichen Element- und mineralogischer Zusammensetzung zeigen die Pulver unterschiedliche Färbung.

Für Rasterelektronenmikroskopie mit SEM und EDX, Oberflächen Analysen mit XPS und zur Untersuchung der verbundenen Porosität werden Dünnschliffe angefertigt.



Bundesamt für Strahlenschutz

## Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 19 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

Abb. 8 zeigt den experimentellen Aufbau in einer Inertgas-Handschuhbox, die verwendet wird, um Porenwasser durch Äquibrierung mit dem Gestein zu gewinnen. Über den Reaktionsgefäßen befinden sich „Gasmäuse“, die zum Auffangen der Gasphase für die Analyse des CO<sub>2</sub>-Gleichgewichts benötigt werden.



Abb. 7: Pulverproben aus den Bohrkernen 002\_KIT, 003\_KIT, 004\_KIT, 005\_KIT und 006\_KIT.



Abb. 8: Experimenteller Aufbau in einer Inertgas-Handschuhbox zur Untersuchung der CO<sub>2</sub>-Gas Gleichgewichte und zur Gewinnung von Porenwasser auch durch Äquibrierung mit dem Gestein.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 20 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

## **4 ZUSAMMENFASSUNG UND AUSBLICK AUF DIE FOLGENDEN ARBEITEN**

Die nachfolgenden Arbeiten zur Charakterisierung der Gesteinsproben sind im Teil 2 beschrieben [20]. In diesem Bericht sind auch die verwendeten Analysemethoden aufgeführt. Für die Analysen und Experimente wird Material aus den zentralen Bereichen der Bohrkernpräparate, welche möglichst wenig mit der Bohrspülung in Kontakt waren.

Die Elementanalyse der Bohrspülung lieferte keine signifikante Signatur, die zur Kontrolle der Kontaminationsfreiheit geeignet wäre. Dies betrifft sowohl die Elementzusammensetzung als auch die Mineralogie. Abradiertes Material von der Bohrgarnitur konnte nicht festgestellt werden. Details werden im Teil 2 [20] diskutiert.

Verschiedene Größenfraktionen der Gesteinsproben und Dünnschliffe, wie sie für die Durchführung der Charakterisierung der Gesteine und für die Sorptionsexperimente benötigt werden, wurden hergestellt.

Es war im Angebot vorgesehen, die Sorptionsexperimente in einer wässrigen Phase durchzuführen, die dem jeweiligen Porenwasser des Gesteins entspricht. Allerdings war keine Porenwassergewinnung möglich (siehe Teil 2). Mittlerweile wurde von BfS die Verwendung eines natürlichen Grundwassers für die Durchführung der Sorptionsexperimente vorgeschlagen. Dieses Wasser aus der Pegelbohrung PN2 würde eine repräsentative Zusammensetzung des Grundwassers (GW) widerspiegeln (Hydrochemischer Analysedatensatz für PN2-2010-230m). Das BfS gab hierzu die Information, dass die Pegelbohrung GW23 (früher PN2) in geografischer Nähe zur Bohrung Remlingen 15 liegt und dass die Entnahmestelle sowohl in einer akzeptablen Teufe als auch litho-stratigrafischen Situation an der Grenze Unterer Muschelkalk (GW-Leiter) / Oberer Buntsandstein (GW-Geringleiter) installiert ist.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 21 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

## LITERATURVERZEICHNIS

- [1] , "Untersuchungen zur Bestimmung der Rückhalteeigenschaften von Gesteinen über der Schachtanlage Asse II gegenüber gelösten Radionukliden Bericht 16/89," GSF TL 28/89, 11.1989 1989.
- [2] W. Bode and C. Wolfrum, "Retardation of dissolved radionuclides in consolidated sedimentary rocks. The influence of MgCl<sub>2</sub> brine," in *Proceedings of the 6<sup>th</sup> International Symposium on Water-Rock Interaction, Malvern, 3-8 August 1989*, 1989.
- [3] C. Wolfrum, D. Klotz, and W. Bode, "Bestimmung des Sorptions-/Desorptionsverhaltens aus gewählter Radionuklide an Sedimentgesteinsproben des Asse-Deckgebirges," GSF GSF-Bericht 25/88, 1988.
- [4] W. Bode and e. al., "Standort- und Sicherheitsuntersuchungen für das Salzbergwerk Asse sowie ingenieurtechnische Entwicklungen GSF-Bericht 31/90," GSF, Institut für Tief Lagerung TL 35/90, 06.1990 1990.
- [5] K. Gompper and P. Vejmelka, "Nuklidmigration im Deckgebirge des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM). Teil 2: Sorption im Deckgebirge," ed, 1998, pp. FZK-INE 20/98.
- [6] , "Bestimmung von IN-SITU Elementverteilungen im Deckgebirge des Endlagers für Radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM)," ed, 1998, p. Persönliche Mitteilungen.
- [7] P. Vejmelka, T. Fanghaenel, B. Kienzler, E. Korthaus, J. Roemer, W. Schuessler, and R. Artinger, "Sorption and Migration of Radionuclides in Granite (HRL ÄSPÖ, Sweden)," Forschungszentrum Karlsruhe FZKA 6488, 2000.
- [8] "Zusammenstellung von Daten zur wissenschaftlich belastbaren Abschätzung potentieller Strahlenexpositionen in der Umgebung der Schachtanlage Asse II," Institut für Nukleare Entsorgung (INE) KIT-INE 001/10, 2010.
- [9] L. Duro, "Preface," *Applied Geochemistry*, vol. 27, p. 377, 2012.
- [10] M. Altmaier, L. Duro, M. Grivé, V. Montoya, G. Buckau, and B. Kienzler, "RECOZY: "Understanding of Redox Phenomena Controlling the Long-term Release/Retention of Radionuclides in Nuclear Waste Disposal"," in *EURADWASTE '13, 8<sup>th</sup> EC Conference on the Management of Radioactive Waste Community Policy and Research on Disposal*, Vilnius, Lithuania, 14-17 October 2013, 2014, pp. 239-247.
- [11] L. Duro, J. Bruno, M. Grivé, V. Montoya, B. Kienzler, M. Altmaier, and G. Buckau, "Redox processes in the safety case of deep geological repositories of radioactive wastes. Contribution of the European RECOZY Collaborative Project," *Applied Geochemistry*, vol. 49, pp. 206-217, 2014.
- [12] T. Rabung, D. García, V. Montoya, and J. Molinero, "CROCK: Investigations of uncertainties in radio- nuclide transport processes in the far-field of a repository in crystalline rock," in *EURADWASTE '13, 8<sup>th</sup> EC Conference on the Management of Radioactive Waste Community Policy and Research on Disposal*, Vilnius, Lithuania, 14-17 October 2013, 2014, pp. 303-311.
- [13] T. Rabung, J. Molinero, D. Garcia, and V. Montoya, "Final Workshop Proceedings of the Collaborative Project" Crystalline Rock Retention Processes"(7th EC FP CP CROCK)," Karlsruhe Institute of Technology, Karlsruhe2014.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 22 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

- [14] T. Rabung, J. Molinero, D. Garcia, and V. Montoya, "1<sup>st</sup> Workshop Proceedings of the Collaborative Project „Crystalline Rock Retention Processes“ (7th EC FP CP CROCK)," KIT, Karlsruhe KIT Scientific Report Series 7629, 2012.
- [15] "Sicherheits- und Gesundheitsschutzdokument gem. § 3 ABergV," 11.06.2013, vol. Übernahme, Verpackung und Vorbereitung von Gesteinsproben, 2013.
- [16] E. Silvester, L. Charlet, C. Tournassat, A. Géhin, J.-M. Grenèche, and E. Liger, "Redox potential measurements and Mössbauer spectrometry of FeII adsorbed onto FeIII (oxyhydr)oxides," *Geochimica et Cosmochimica Acta*, vol. 69, pp. 4801-4815, 2005.
- [17] "Sicherheits- und Gesundheitsschutzdokument gem. § 3 ABergV," 04.07.2013, vol. Gewinnung Verpackung und Vorbereitung von Probenmaterial für die Untersuchung von Porenwasser (besonders aus den Rötgesteinen) an der Erkundungsbohrung Remlingen 15., 2013.
- [18] B. Torstenfelt, K. Andersson, and B. Allard, "Sorption of strontium and cesium on rocks and minerals," *Chemical Geology*, vol. 36, pp. 123-137, 1982.
- [19] T. T. Vandergraaf, K. V. Ticknor, and T. W. Melnyk, "The selection of a Sorption Data Base for the Geosphere Model in the Canadian Nuclear Fuel Waste Management Program," *Journal of Contaminant Hydrology*, vol. 13, pp. 327-345, 1993.
- [20]

"Schachtanlage Asse II - Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15. Teil 2: Charakterisierung der Gesteine," *KIT-INE 002/2015*, 2015 (in Vorbereitung).



Bundesamt für Strahlenschutz

# Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 23 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

## ANHANG A      **BESPRECHUNGSNOTIZ 05.06.2013**



### Institut für Nukleare Entsorgung (INE)

Leiter/in: Prof. Dr. Horst Geckeis

Hermann-von-Helmholtz-Platz 1  
76344 Eggenstein-Leopoldshafen

Telefon: 0721 608-2  
Fax: 0721 608-2-4308  
E-Mail:  
Web:

Bearbeiter/in:  
Unser Zeichen:  
Datum: 06.06.2013

### Besprechungs Notiz

Thema: Radionuklidrückhaltung im Deckgebirge: Probenahme durch KIT-INE

Teilnehmer:

Zeit/Ort: Asse, Erkundungsbohrung Remlingen 15  
05.06.2013, 11:00 – 13:30

Folgende Themen wurden diskutiert:

1. Sicherheits- und Gesundheitsdokument
2. Handhabung, Verpackung und Verwahrung der Gesteinsproben
3. Auswahl der Gesteinsschichten
4. Termine
5. Sonstiges

#### Allgemeines

Die Bohrung wurde am 05.06.2013 in Anwesenheit von Herrn König und zahlreichen Journalisten begonnen, es ist vorgesehen bis November 2013 in eine Tiefe von ca. 800 m ins Salz zu bohren. Im oberen Bereich beträgt die Bohrgeschwindigkeit ca. 30 m pro Tag, in tieferen Schichten ca. 15 m/Tag. Es wird eine Bohrspülung verwendet, die ca. 6% Bentonit, 2% Zellulose und jeweils 0.1%  $\text{NaHCO}_3$  und  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  enthält, im Bereich des Steinsalzes wird  $\text{MgCl}_2/\text{NaCl}$  Lösung statt Wasser verwendet.

Nach Durchbohren zusammengehöriger Schichten werden jeweils physikalische Messungen im Bohrloch einschließlich hydraulischer Tests durchgeführt. Danach wird das Bohrloch aufgeweitet, eine Verrohrung eingebracht und dahinter zementiert. Diese Arbeiten benötigen ca. 1 Woche.



Bundesamt für Strahlenschutz

# Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 24 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

2

Die Bohrkern werden in einem Plastikrohr gewonnen und sollten wenig mit Bohrspülung in Kontakt gekommen sein.

Weitere Bohrungen im Deckgebirge sind vorgesehen.

### 1. Sicherheits- und Gesundheitsdokument

weist darauf hin, dass zum Arbeiten auf der Bohrstelle, ein Sicherheits- und Gesundheitsdokument von der Bergbehörde gefordert wird, welches auch den Umgang mit gefährlichen Stoffen beinhaltet. wird ein entsprechendes Beispiel per e-mail an INE schicken.

Es muss geklärt werden, wie Gase (Argon bzw. flüssiger Stickstoff auf der Bohrstelle gelagert werden können und ob eine Umzäunung usw. erforderlich ist.

INE sagt zu, das Sicherheits- und Gesundheitsdokument so schnell als möglich einschließlich der erforderlichen Datenblätter zusammen zu stellen und an Asse GmbH zu senden.

### 2. Handhabung, Verpackung und Verwahrung der Gesteinsproben

KIT-INE stellt vor, wie die Probenstücke (Bohrkerne der Länge 40-50 cm im Durchmesser der Kernbohrung) direkt nach der Entnahme aus der Bohrung in Folie verpackt, der Folien Sack mit Argongas gespült und dann verschweißt werden soll. Danach werden die Proben entweder in ein 200 L Fass einglegt, welches verschraubt und dann mit Argon gespült wird. Die Gesteinsproben sollten möglichst kurz an Luft gelagert sein. Für diese Art der Verpackung kann – nach Einweisung – ggf. auf Personal der KUTEC zurückgegriffen werden.

KIT-INE liefert geeignete Verpackungsfolien und das zugehörige Folienschweißgerät. Argon wird auf einer zugelassenen Lager- und Transportpalette von der Fa. Air Liquide zur Erkundungsbohrung geliefert.

Die Art der Probennahme erscheint unproblematisch und kann ohne Störung des Ablaufs der Bohrung durchgeführt werden.

Schwieriger stellt sich die Probennahme/-vorbereitung für die Proben zur Untersuchung der Porenwässer dar. Es war vorgesehen, das Innere einer Bohrkernscheibe zu gewinnen und diese in flüssigem Stickstoff tief zu gefrieren.

Asse GmbH und KUTEC sehen keine Möglichkeiten die Bohrkern entsprechend zu bearbeiten. Es wurde vereinbart nur Scheiben von ca. 10 cm Länge von den Kernen abzutrennen.

Die Frage des Tiefgefrierens konnte nicht abschließend geklärt werden. (Diese Option wird von BRGM empfohlen.) Hierzu muss zunächst abgeklärt werden, welche Unterlagen die Bergbehörde benötigt. Eine mögliche Option wäre, die Scheiben in Folie unter Vakuum einzuschweißen und dann in einem transportablen Kühlgerät bei -18°C zu gefrieren und so ins KIT-INE zu transportieren

### 3. Auswahl der Gesteinsschichten

Im Rahmen Leistungsbeschreibung wurden von BFS Untersuchungen an folgenden Gesteinen angefragt:

- Unterer Muschelkalk: Schaumkalkbänke (muS), Wellenkalk 3 (muW3), Wellenkalk 2 (muW2), Wellenkalk 1 (muW1)
- Oberer Buntsandstein: Rötaquitard (so4), Rötaquitard (so3), Rötaquitard (so2), Rötanhydrit 1 (so1A)
- Hutgestein: Ry.



Bundesamt für Strahlenschutz

# Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.		Seite: 25 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAA	AA	NNNN	NN		
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00		Stand: 14.12.2015

3

Im Rahmen der Diskussion wurde festgestellt, dass die Muschelkalk Gesteine sehr hart und dicht sind, sehr geringe Porosität aufweisen und als Klufteleiter anzusehen sind. Diese Schichten werden von BFS als weniger relevant für eine potentielle Radionuklidrückhaltung angesehen.

Wichtiger sind die Rötgesteine, Salztone und die Hutgesteine. Es wurde daher vereinbart, dass die Proben weniger nach der Schichtfolge sondern nach "interessanten" Eigenschaften ausgewählt werden sollen. Besonders interessant sind Klüfte bzw. Klufmaterialien, auch wenn diese nicht als kompakter Bohrkern gewonnen werden können. Eine intensivere Beprobung soll im Rötgestein erfolgen. KIT-INE bereitet insgesamt 20-22 Probenbehälter vor.

werden KIT-INE informieren, wenn "interessante" Proben anfallen.

Auch die Untersuchung der Porenwässer der Rötgesteine haben Priorität gegenüber denjenigen des Muschelkalks.

#### 4. Termine

Es wird vereinbart, dass \_\_\_\_\_ in der kommenden Woche (ca. 13.-14.06.2013) zur Asse kommt und einige Muschelkalk Bohrkern verpackt und die Mitarbeiter der Fa KUTEC einweist. Eine Beschreibung der Arbeitsabläufe wird erstellt.

Die "interessanten" Proben fallen im Röt an, welches Ende Juni erreicht wird. Insgesamt werden etwa 30 Tage zum Durchbohren der Rötschichten angesetzt.

Ob dabei eine oder mehrere Unterbrechungen zur physikalischen Charakterisierung der Gesteine stattfinden konnte nicht geklärt werden.

#### 5. Sonstiges

\_\_\_\_\_ wird Proben der Spüllösung nehmen.

INE hat auch großes Interesse an ggf. mit den Gesteinen anfallenden Wässern.



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 26 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

## ANHANG B ANALYSEN DER BOHRSPÜLUNG

Leider war es nicht möglich, unverbrauchte Spüllösung zu erhalten. Bohrspülungen wurden beim Wiederaustreten aus der Bohrung gewonnen. Die Bohrspüllösungen wurden filtriert und dann der Elementanalyse zugeführt. In der Tabelle sind nur Kationen mit mehr als 10 mg/L aufgeführt. Insbesondere die Bestandteile von Stahl, wie sie durch Abrasion von Bohrer oder Gestänge auftreten könnten (Co, Ni, Mn), lagen um mehrere Größenordnungen unter diesem Wert.

Tab. II: Kationenanalysen der Bohrspülungen.

	<b>Muschelkalk</b> 13.06.2013	<b>Buntsandstein</b> 07.01.2014
	mg/L	mg/L
Na	608.00	2674.00
Mg	7.34	-
Al	0.02	0.05
Si	42.80	35.18
K	10.10	63.00
Ca	5.96	74.37
Sr	0.35	2.47
Ba	0.31	0.12

Tab. III: Anionenanalysen der Bohrspülungen.

	<b>Muschelkalk</b> 13.06.2013	<b>Buntsandstein</b> 07.01.2014
	mg/L	mg/L
F	0	164.8
Cl	452.8	3286.2
SO <sub>4</sub>	44.1	1147.6

Nach Angabe des BfS sollten in der Bohrspülung 5 - 6 % Bentonit bzw. Attapulgit, NaCl, Soda und Natriumbicarbonat vorhanden sein. An einer Probe des gefilterten und eingetrockneten Überstands der Spüllösung, die nach Absetzen der festen Bestandteile bzw. des Bohrkleins erhalten wurde, wurde Pulverdiffraktometrie (XRD) mit einem Bruker AXS D8 Diffraktometer durchgeführt. (Abb. 9). In diesem Trocknungsrückstand wurden folgende Phasen identifiziert: Halit (NaCl), Natron (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>·10H<sub>2</sub>O) und Wegscheiderit (Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>·3NaHCO<sub>3</sub>). Diese Phasen entsprechen der angegebenen Zusammensetzung.

Darüberhinaus wurden Röntgenpulverdiffraktometrie an Suspensionen der Bohrspülung durchgeführt. Diese entstanden durch Absetzen der groben festen Bestandteile bzw. des Bohrkleins. Diese Suspensionen enthielten noch hinreichende Mengen an feinpartikulären (kolloidalen) Bestandteilen, die mittels XRD charakterisiert wurden. In diesen Suspensionen konnten Kalzit, Quarz, Glimmer und das Schichtsilikat Chlorit nachgewiesen werden. Im 2-θ

				<b>Schachtanlage Asse II, Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben aus der Bohrung Remlingen 15 Teil 1: Probenahme</b>		
Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 27 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

Bereich  $< 10^\circ$  findet sich auch ein Reflex, der den zugegebenen Tonphasen zugeordnet werden konnte.

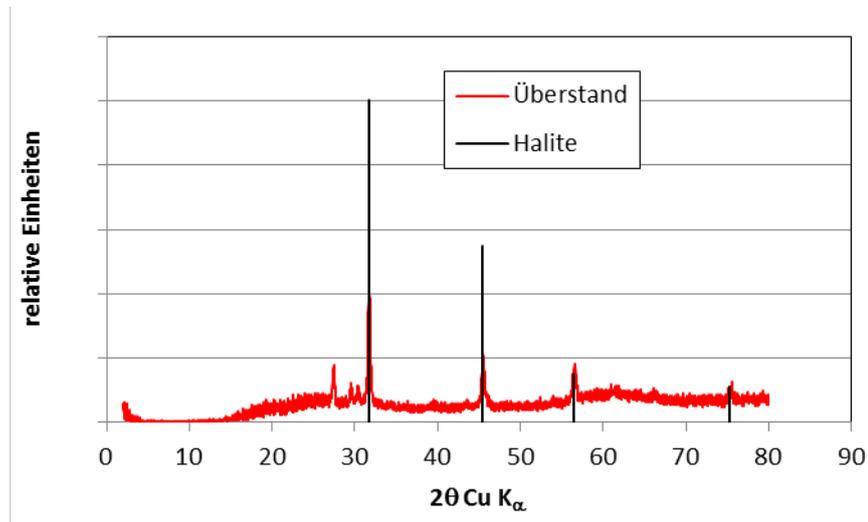


Abb. 9: Röntgendiffraktogramm des getrockneten Überstands der Spüllösung (13.06.2013). Identifizierte Phasen in getrockneten Überstand: NaCl (eingezeichnete Linien),  $\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot 3\text{NaHCO}_3$ .

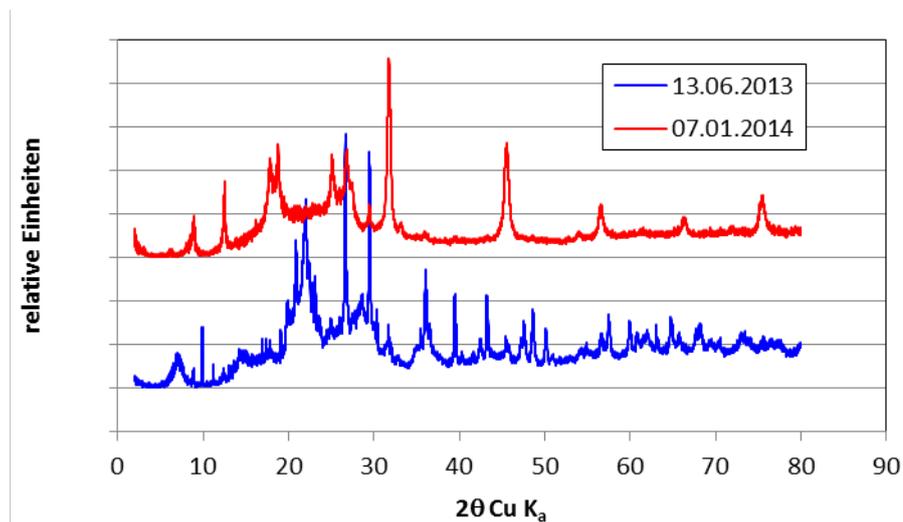


Abb. 10: Röntgendiffraktogramme der beiden Bohrspülsuspensionen, die am 13.06.2013 (Muschelkalk) und am 07.01.2014 (Buntsandstein) gewonnen wurden. Identifizierte Phasen: Kalzit, Quarz, Glimmer und das Schichtsilikat Chlorit, im  $2-\theta$  Bereich  $< 10^\circ$  findet sich ein breiter Reflex, der Tonphasen zugeordnet werden kann.

Weitere Analysen der Bohrspülungen wurde mit der Infrarotspektroskopie durchgeführt (siehe Teil 2 [20]). Für die Infrarot-Messungen wurde ein Bruker IFS 55 EQUINOX Spektrometer verwendet,



Bundesamt für Strahlenschutz

**Schachtanlage Asse II,  
Sorptionsuntersuchungen an Gesteinsproben  
aus der Bohrung Remlingen 15  
Teil 1: Probenahme**

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.	Seite: 28 von 28
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	24250000	EGC	RZ	0002	00	Stand: 14.12.2015

das mit einem DTGS (deuterated triglycine sulphate) Detektor ausgerüstet ist. Gemessen wurde im mittleren Infrarot, im spektralen Bereich zwischen  $4000$  und  $400\text{ cm}^{-1}$ . Die Proben wiesen im Wellenzahlenbereich  $1200 - 1800\text{ cm}^{-1}$  mehrere starke Banden auf, deren exakte Zuweisung jedoch nicht möglich war. Nachgewiesen werden konnten Karbonat- ( $1419\text{ cm}^{-1}$ ) und Silikatschwingungen ( $1107, 1032\text{ cm}^{-1}$ ), mehrere Banden von Carboxylgruppen ( $1271, 1323\text{ cm}^{-1}$ ) sowie C=C-Doppelbindungen. Alle diese Schwingungen zeigten im Vergleich zu Literaturwerten leichte Verschiebungen ihrer Positionen auf, so dass eine eindeutige Zuordnung nicht möglich war.